

## 明 細 書

## マスターバッチペレット混合物

## 技術分野

本発明は、マスターバッチペレット混合物に関する。

本願は、2003年4月30日に出願された特願2003-125095号に対し優先権を主張し、その内容をここに援用する。

## 背景技術

樹脂材料に染料、顔料、添加剤等の配合剤を添加混合する際に、まず少量の樹脂材料に配合剤の全量を加えてよく分散混合した高濃度のものを調整し、これに大量の樹脂材料を加えて目的の濃度のものを得る方法が行われている。この方法では、分散混合が短時間で行え、工程の管理も容易になるなどの利点がある。この高濃度配合物をマスターバッチという。前記樹脂材料として熱可塑性樹脂を用いた場合、熱可塑性樹脂中に配合剤を高濃度に添加混合して、均一に混練した、ペレット状のマスターバッチが知られている。なお、本発明では、マスターバッチを目的の濃度に調整する樹脂を被添加樹脂とする。

マスターバッチペレットの使用方法としては、成形機に供給する前に、予めマスターバッチペレットと被添加樹脂ペレットとをタンブラー型ミキサー等の混合機により混合した後、その混合物を成形機に供給する方法が一般的である。

前記マスターバッチペレットと被添加樹脂ペレットとの混合物の成形機への供給方法としては、自然落下式、空気輸送式等がある。ここで問題となるのが、ペレットの混合物を成形機へ供給する際、輸送距離や方法によっては、混合されたペレットが分離して不均一となり、その結果として成形物に組成むらが生じ、均一な色や機能をもった製品が生産できなくなることである。従来、このペレットの分離を防止する方法としては、すべてのペレットの形状やサイズを同程度にする方法が一般的であった。

また、ペレットの分離を防止する別の方法として、次の方法がある。すなわち、

マスターバッチペレットと被添加樹脂ペレットとを予め混合せずに、マスターバッチペレットと被添加樹脂ペレットとを、個別の供給機を用いて成形機に供給し、成形機の方法供給口の直前で、マスターバッチペレットと被添加樹脂ペレットとを混合する別供給機方式である。この方法では、マスターバッチペレットと被添加樹脂ペレットとの混合が、成形機の方法供給口の直前で行われるので、ペレットの分離は抑制できる。

しかしながら、近年、成形物の高機能化が進み、それに伴い必要な添加剤を含有したマスターバッチの種類が増加している。また、多様な色相の成形物が要求されるようになり、その色相に必要な染料や顔料を含有したマスターバッチの種類も増加している。上記の別供給機方式では、マスターバッチの種類と同数の供給機が必要となるので、生産ラインを構築するための設備費が、非常に高くなる問題点がある。そこで、設備費を抑えるためには、供給機の数減らすしかなく、前述の通り、複数のマスターバッチペレット及び被添加樹脂ペレットをミキサー等で均一に混合し、このペレットの混合物を成形機に供給せざるを得ないのが実情である。

前述のとおり、数種類のマスターバッチペレットを混合すると、形状、サイズ、比重等の相違や静電気の影響により、ペレット同士が分離して不均一となる問題がある。特に、比重差の大きいマスターバッチペレット同士を混合した場合、ペレット同士の分離がより顕著になり、大きな問題となっている。形状の相違や静電気が原因の分離に関しては、形状及びサイズの調整や帯電防止剤の添加等により、ある程度防止することができる。しかしながら、マスターバッチペレットの比重は、添加する添加剤、染料、顔料等によって異なる。このため、数種類のマスターバッチペレットの比重をすべて同一にすることは困難である。

これらの問題を解決するために、被添加樹脂ペレット1個当たりの平均重量( $W_a$ )に対するマスターバッチペレット1個当たりの平均重量( $W_b$ )のとの重量比( $W_b/W_a$ )を0.45~0.95に設定する方法が開示されている(例えば、特開平7-102155号公報参照。)。しかしながら、この方法では、各ペレット1個当たりの平均重量を一定の範囲にする必要があり、平均重量を合わせるため、高比重のペレットはサイズを小さく、低比重のペレットはサイズを大き

くする必要がある。このように、比重の異なるペレットごとでサイズが異なるため、ペレットの分離を十分に防止することができなかった。特に、高比重のペレットは、サイズが小さいため、ペレットの分離がより顕著になる問題があった。

また、数種類のマスターバッチペレットからなる混合物において、混合物中のペレットの見掛け比重の最大値と最小値との差を  $0.5 \text{ g/cm}^3$  以下に抑えたマスターバッチペレット混合物が提案されている。このように見掛け比重を調整するために、各ペレットに発泡剤や高比重充填材を添加する方法が開示されている（例えば、特開平 7-216099 号公報参照。）。しかしながら、この方法では、マスターバッチペレットに発泡剤を添加した場合、成形物表面のシルバーストリーク（発泡剤に残存するガスが、成形物と金型との間に入り込み、成形物表面に筋状の表面荒れが発生する現象）の発生や成形したフィルムの穴あき等の成形不良を生じる問題がある。一方、マスターバッチペレットに高比重充填材を添加した場合、高比重充填材には重金属を含んだものが多いため、環境問題等の観点から添加できる物質が限られるという問題がある。さらに、これらの発泡剤や高比重充填材の添加は、成形物の色相への影響があり、好ましいものではなかった。

さらに、マスターバッチペレット及び被添加樹脂ペレットをブレンダーやミキサーで混合せずに、定量供給装置に用いて成形機のスクリー上部に直接供給する方法が開示されている（例えば、特開平 11-279282 号公報参照。）。しかしながら、この方法で用いるペレットは、均一に成形機に供給するために、一定の範囲の形状及びサイズにした上で、ペレット間の比重差を小さくする必要がある、特に比重が大きい酸化チタンを添加したマスターバッチペレットは、ペレット間の比重差を小さくするために、マスターバッチ中の酸化チタンの含有量を 50 質量%程度に抑える必要があり、配合の自由度が損なわれるという問題があった。

本発明が解決しようとする課題は、高比重のマスターバッチペレットと低比重のマスターバッチペレットとの混合物であっても、当該マスターバッチペレット混合物を成形機に供給する際に、ペレットが分離することなく均一な混合状態を維持して、安定に供給することができ、よって組成むらのない均一な成形物を得

ることのできるマスターバッチペレット混合物を提供することである。

#### 発明の開示

本発明らは、上記課題を解決すべく鋭意検討を重ねた結果、マスターバッチペレット混合物中の比重が異なるマスターバッチペレットを、高比重のものと低比重のものに分け、マスターバッチペレットの細長さを表す値として、ペレットの高さを底面積で除した値を算出し、高比重のものと低比重のものの間のこの値の差が一定の範囲にあれば、ペレットが分離することなく、安定して成形機に供給され、組成むらのない成形物を得ることのできることを見出した。

本発明のマスターバッチペレット混合物は、比重 1.8～3.5 を有する高比重マスターバッチペレット群 (A) と、比重 0.5～1.6 を有する低比重マスターバッチペレット群 (B) との混合物である。前記高比重マスターバッチペレット群 (A) は、第 1 種から第 m 種までの m 種の比重の異なる柱状マスターバッチペレットで構成され、前記低比重マスターバッチペレット群 (B) は、第 1 種から第 n 種までの n 種の比重の異なる柱状マスターバッチペレットで構成される。

——前記高比重マスターバッチペレット群 (A) と前記低比重マスターバッチペレット群 (B) とは、下式 (1) を満足する。

$$0.5 \text{ (mm}^{-1}\text{)} \leq \sum_{p=1}^m \left( \frac{H_p}{S_p} \times R_p \right) - \sum_{q=1}^n \left( \frac{H_q}{S_q} \times R_q \right) \leq 1.2 \text{ (mm}^{-1}\text{)} \quad (1)$$

式中の各記号は下記を意味する。

m : 1～10 の整数

n : 1～10 の整数

p : 高比重マスターバッチペレット群 (A) を構成する柱状マスターバッチペレットの種番号

q : 低比重マスターバッチペレット群 (B) を構成する柱状マスターバッチペレットの種番号

H<sub>p</sub>：高比重マスターバッチペレット群（A）を構成する第 p 種の柱状マスターバッチペレットの高さ（mm）

S<sub>p</sub>：高比重マスターバッチペレット群（A）を構成する第 p 種の柱状マスターバッチペレットの底面積（mm<sup>2</sup>）

R<sub>p</sub>：高比重マスターバッチペレット群（A）の全質量に対する第 p 種の柱状マスターバッチペレットの質量の割合

H<sub>q</sub>：低比重マスターバッチペレット群（B）を構成する第 q 種の柱状マスターバッチペレットの高さ（mm）

S<sub>q</sub>：低比重マスターバッチペレット群（B）を構成する第 q 種の柱状マスターバッチペレットの底面積（mm<sup>2</sup>）

R<sub>q</sub>：低比重マスターバッチペレット群（B）の全質量に対する第 q 種の柱状マスターバッチペレットの質量の割合

なお、前記マスターバッチペレットが直方体（四角柱）の場合は、該直方体の 1 つの頂点に接する 3 辺の中で、最も長い辺の長さを高さとし、残りの 2 辺が含まれる面を底面としてよい。

#### 発明を実施するための最良の形態

本発明は、高比重のマスターバッチペレットと低比重のマスターバッチペレットとの混合物に関する。さらに詳しくは、マスターバッチペレット混合物を成形機に供給する際に、ペレットが分離することなく均一な混合状態を維持して、安定に供給することができ、組成むらのない均一な成形物を得ることのできるマスターバッチペレット混合物に関するものである。

本発明で用いられるマスターバッチは、熱可塑性樹脂に染料、顔料、添加剤等を高濃度で添加して分散させたものであって、柱状のペレットである。

また、1 種のマスターバッチ中に、複数の染料、顔料及び添加剤等が添加されていても構わない。なお、本発明において柱状とは、柱であればよく、円柱、四角柱、三角柱、多角柱等の様々な柱の意味を含んでいてもよい。好ましいのは円柱や四角柱である。

前記マスターバッチに用いられる熱可塑性樹脂は、被添加樹脂と同種又は被添

加樹脂と相溶する樹脂が好ましく、また常温において固体で、マスターバッチの加熱溶融時に熱分解、熱劣化を起こさないものが好ましい。このような熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテン、ポリメチルペンテン、ポリジシクロペンタジエン等のポリオレフィン樹脂；ポリ酢酸ビニル樹脂；ポリスチレン樹脂；ポリカーボネート樹脂；ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル樹脂；ポリアミド樹脂；エチレンープロピレン共重合体、エチレンー酢酸ビニル共重合体、アクリロニトリルーブタジエンスチレン共重合体、アクリロニトリルースチレン共重合体等の共重合体；ポリ乳酸等の生分解性樹脂などが挙げられる。さらに、これら以外の樹脂であっても、添加剤の分散性が良好で、被添加樹脂との相容性がよいものであれば特に限定されるものではない。マスターバッチに1種のみ添加することも、2種以上を併用して添加することもできる。

また、マスターバッチと混合される被添加樹脂としては、上記のマスターバッチに用いられる熱可塑性樹脂として挙げたものを用いることができる。また、熱可塑性エラストマー、ABSーポリカーボネート等のポリマーアロイ、ガラス繊維やタルクなどの体質顔料によって複合化された熱可塑性複合材料なども被添加樹脂として用いることができる。マスターバッチに1種のみ添加することも、2種以上を併用して添加することもできる。

前記マスターバッチに添加される染料又は顔料には、染料、有機顔料及び無機顔料を特に制限なく用いることができる。染料としては、例えば、塩基性染料、酸性染料等の水溶性染料；アゾ系、ペリレン系等の油溶性染料；蛍光染料；電子デバイスに使用される機能性染料などが挙げられる。また、有機顔料としては、例えば、不溶性アゾ、縮合アゾ、金属錯塩アゾ、ベンズイミダゾロン等のアゾ系顔料；フタロシアニンプルー、フタロシアニングリーン等のフタロシアニン系顔料、アントラキノン系顔料、インジゴ系顔料、ペリレン系顔料、ペリノン系顔料、キノフタロン系顔料、ジオキサジン系顔料、キナクリドン系顔料、イソインドリノン系顔料、金属錯塩系顔料、メチン・アゾメチン系顔料、ジケトピロロピロール系顔料等の多環系顔料などが挙げられる。また、無機顔料としては、例えば、酸化チタン等のチタン系顔料；弁柄、黄色酸化鉄、鉄黒等の酸化鉄系顔料；コバ

ルトブルー、チタンイエロー等の複合酸化物系顔料；黄鉛等のクロム酸塩系顔料；カドミウムイエロー等の硫化物系顔料；群青等の珪酸塩系顔料；カーボンブラックなどが挙げられる。さらに、蓄光顔料、蛍光顔料等の機能性顔料も挙げられる。これらの染料又は顔料は、マスターバッチに1種のみ添加することも、2種以上を併用して添加することもできる。

前記マスターバッチに添加される添加剤としては、体質顔料、充填剤、分散剤、酸化防止剤、光安定剤、スリップ剤、帯電防止剤、加工助剤、アンチブロッキング剤、紫外線吸収剤、結晶核剤、発泡剤、抗菌剤、難燃剤などが挙げられる。これらの添加剤は、マスターバッチに1種のみ添加することも、2種以上を併用して添加することもできる。

本発明で用いられるマスターバッチペレットの製造方法としては、例えば、所望の色相や機能を発現できるように、熱可塑性樹脂、染料、顔料、各種添加剤等を混合した後、これらを熔融混練したものを、ダイス穴が約1～5mm径で5～30穴のダイスヘッドを備えた押出機からストランド状に吐出し、そのストランド状物を水槽で冷却した後、ペレタイザーで切断、賦型する、ストランドカット方式が挙げられる。また、前記マスターバッチペレットは、上記ストランドカット方式以外に、ホットカット方式又はシートカット法等によっても製造することができる。熱可塑性樹脂と、染料、顔料、各種添加剤とを熔融混練する熔融混練機としては、特に制限はない。例えば、単軸押出機、二軸押出機等の連続押出機；バンバリーミキサー、ニーダー等のバッチ式混練機；三本ロールミル及び二本ロールミル等を用いることができる。賦形ができない混練機を用いた場合は、フィーダールーダー等の熔融混練物を単純に賦形する機械によって賦形して、前記マスターバッチペレットを製造することができる。

本発明に用いられる比重1.8～3.5を有する高比重マスターバッチペレット群（A）を構成するマスターバッチペレットの例としては、以下のものが挙げられる。なお、以下に挙げた例以外のものでも、比重1.8～3.5を有するものであれば、高比重マスターバッチペレット群（A）を構成しうる。

ペレット群（A）のペレット例

熱可塑性樹脂として低密度ポリエチレン（比重0.92）を用いた場合：65

～85質量%程度の酸化チタン（比重4.2）、65～85質量%程度のチタンイエロー（比重4.5）、60～80質量%程度の弁柄（比重5.2）を配合したマスターバッチペレット。

熱可塑性樹脂としてポリスチレン（比重1.05）を用いた場合：55～85質量%程度の酸化チタン（比重4.2）、55～85質量%程度のチタンイエロー（比重4.5）、50～80質量%程度の弁柄（比重5.2）を配合したマスターバッチペレット。

熱可塑性樹脂としてポリカーボネート（比重1.19）を用いた場合：50～85質量%程度の酸化チタン（比重4.2）、50～85質量%程度のチタンイエロー（比重4.5）、45～80質量%程度の弁柄（比重5.2）を配合したマスターバッチペレット。

熱可塑性樹脂としてポリエチレンテレフタレート（比重1.39）を用いた場合：35～85質量%程度の酸化チタン（比重4.2）、35～85質量%程度のチタンイエロー（比重4.5）、30～80質量%程度の弁柄（比重5.2）を配合したマスターバッチペレット。

一方、本発明に用いられる比重0.5～1.6を有する低比重マスターバッチペレット群（B）を構成するマスターバッチペレットの例としては、熱可塑性樹脂として、前記低密度ポリエチレン（比重0.92）、ポリスチレン（比重1.05）、ポリカーボネート（比重1.19）、ポリエチレンテレフタレート（比重1.39）のいずれかを用いて、有機顔料（比重1.6）又はカーボンブラック（比重1.8）を配合したものなどが挙げられる。なお、これらのマスターバッチペレットは、配合比率に関係なく低比重マスターバッチペレット群（B）を構成しうる。

上記で述べたように、本発明のマスターバッチペレット混合物に含まれる、少なくとも一種のペレットを含む高比重マスターバッチペレット群（A）は、m種類、すなわち1～10種類のペレット、から任意に構成されることができ、少なくとも一種のペレットを含む低比重マスターバッチペレット群（B）は、n種類、すなわち1～10種類のペレット、から任意に構成されることができ、また本発明では、高比重マスターバッチペレット群（A）と低比重マスターバッチペ



レット群 (B) は前記式 (1) を満足すれば、どのような質量比であっても良い。しかしながら好ましい例を挙げれば、高比重マスターバッチペレット群 (A) : 低比重マスターバッチペレット群 (B) = 10 : 90 ~ 90 : 10 (質量比) であることが好ましい。より好ましい質量比は 20 : 80 ~ 80 : 20 (質量比) である。

前記式 (1) において、好ましくは、下式 (2) の値は  $1.5 \sim 13 \text{ (mm}^{-1}\text{)}$  の範囲であり、かつ、下式 (3) の値は  $0.5 \sim 1.5 \text{ (mm}^{-1}\text{)}$  の範囲である。

$$\sum_{p=1}^m \left( \frac{H_p}{S_p} \times R_p \right) \quad (2)$$

$$\sum_{q=1}^n \left( \frac{H_q}{S_q} \times R_q \right) \quad (3)$$

前記式 (1) において、好ましくは、前記高比重マスターバッチペレット群 (A) を構成する各柱状マスターバッチペレットの高さ ( $H_p$ ) は  $2.0 \sim 6.0 \text{ mm}$  の範囲であり、前記低比重マスターバッチペレット群 (B) を構成する各柱状マスターバッチペレットの高さ ( $H_q$ ) は  $0.5 \sim 3.0 \text{ mm}$  の範囲であり、これら各柱状マスターバッチペレットの底面積 ( $S_p$  及び  $S_q$ ) はそれぞれ  $0.1 \sim 2.3 \text{ mm}^2$  の範囲である。より好ましい上記高さ ( $H_q$ ) は  $1 \sim 1.5 \text{ mm}$  の範囲である。

本発明で用いるマスターバッチペレットを上記のような小さいサイズにすることにより、通常のサイズ (高さ:  $3 \text{ mm}$ 、底面積:  $7 \text{ mm}^2$  程度) のマスターバッチペレットと比較して、成形物の組成むらをより低減することができる。また、上記のような小さいサイズにすることにより、ペレット 1 個当たりの質量が小さくなるので、計量精度を上げることができ、より精密な配合が可能となり、配合組成の自由度を高めることができる。

本発明のマスターバッチペレット混合物は、従来のマスターバッチペレットと

同様に、被添加樹脂ペレットと混合して、成形機により成形物に加工することができる。成形方法は、目的とする成形物の形状により適宜選択できる。例えば、プラスチックフィルムラミネート積層体等を成形する場合には、インフレーション成形、Tダイ成形等を用いることができる。パイプや窓枠等を成形する場合には、形状を持ったダイス中に熔融樹脂を通過させることによって連続的な成形物を得る押出成形法を用いることができる。また、自動車バンパーやボトルキャップ等の複雑な形状を有する成形物を成形する場合には、開閉作動する成形型のキャビティ（金型）中に断続的に熔融樹脂を射出する射出成形法を用いることができる。ボトル容器や石油タンク等を成形する場合には、連続で押出された熔融樹脂を高圧空気ですくませる中空成形法を用いることができる。

また、本発明のマスターバッチペレット混合物は、一般のマスターバッチの加工方法によって、1種類のマスターバッチに再加工することが出来る。このマスターバッチ再加工（「リペレット化」ともいう）に使用する混練機は、特に限定されるものではない。一度分散加工されたマスターバッチを、再度、混練することになるので、混練力が低い混練機であっても十分に使用できる。例えば、単軸押出機、三軸押出機等の連続押出機；バンバリーミキサー、ニーダー等のバッチ式混練機；三本ロールミル及び二本ロールミル等を用いることができる。賦形ができない混練機を用いた場合は、フィーダールーダー等の熔融混練物を単純に賦形する機械によって賦形して、前記マスターバッチペレットを製造することができる。

### 実施例

以下、実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例の範囲に限定されるものではない。なお、調製例及び表1～4中の「部」は、質量基準である。

#### <調製例1：酸化チタン含有マスターバッチペレットの調製>

酸化チタン（デュポン社製の「タイピュア R-103」）70部、低分子量ポリエチレンワックス（三洋化成社製の「サンワックス161P」）5部、低密度ポリエチレン（日本ユニカー社製の「NUC-8009」）25部及び酸化防止剤（チバススペシャルティケミカル社製の「イルガノックス1076」）0.1部を二軸

押出機（ダイス径 3.5 mm）にて 180℃ で溶融混練した。この溶融混練したものをダイス穴からストランド状に吐出し、このストランドを水槽で冷却した後、ペレタイザーで切断、賦型し、円柱状のマスターバッチペレット（白 1～15）を得た。得られたマスターバッチペレット（白 1～15）は、それぞれペレタイザーの速度を調整することにより、ペレットのサイズを変えた。それぞれのペレットのサイズ及び比重は、表 1 及び 2 に示す。

<調製例 2：弁柄含有マスターバッチペレットの調製>

酸化鉄系顔料である弁柄（戸田弁柄社製の「120ED」）70部及び低分子量ポリエチレンワックス（三洋化成社製の「サンワックス161P」）30部をニーダーにて 120℃ で溶融混練した。この溶融混練したものを三本ロールミルでさらに混練後、冷却、粉碎して弁柄カラーベースを作製した。作製した弁柄カラーベース 57部、低密度ポリエチレン（日本ユニカー社製の「NUC-8009」）43部及び酸化防止剤（チバスペシャルティーケミカル社製の「イルガノックス1076」）0.1部を単軸押出機（ダイス径 3.0 mm）にて 160℃ で溶融混練した。この溶融混練したものをダイス穴からストランド状に吐出し、このストランドを水槽で冷却した後、ペレタイザーで切断、賦型し、円柱状のマスターバッチペレット（茶 1 及び 2）を得た。得られたマスターバッチペレット（茶 1 及び 2）は、それぞれペレタイザーの速度を調整することにより、ペレットのサイズを変えた。それぞれのペレットのサイズ及び比重は、表 1 及び 2 に示す。

<調製例 3：キナクリドン系顔料含有マスターバッチペレットの調製>

キナクリドン系顔料（大日本インキ化学工業株式会社製の「ファーストゲンスーパーレッド 500RS」）50部及び低分子量ポリエチレンワックス（三洋化成社製の「サンワックス161P」）50部をニーダーにて 120℃ で溶融混練した。この溶融混練したものを三本ロールミルでさらに混練後、冷却、粉碎してキナクリドンカラーベースを作製した。作製したキナクリドンカラーベース 60部、低密度ポリエチレン（日本ユニカー社製の「NUC-8009」）40部及び酸化防止剤（チバスペシャルティーケミカル社製の「イルガノックス1076」）0.1部を単軸押出機（ダイス径 3.0 mm）にて 160℃ で溶融混練した。この溶融混練したものをダイス穴からストランド状に吐出し、このストランドを水槽で冷

却した後、ペレタイザーで切断、賦型し、円柱状のマスターバッチペレット（赤1）を得た。得られたマスターバッチペレット（赤1）のペレットのサイズ及び比重は、表1及び2に示す。

＜調製例4：カーボンブラック含有マスターバッチペレットの調製＞

カーボンブラック顔料（三菱化学製の「MA-100」）30部及び低分子量ポリエチレンワックス（三洋化成社製の「サンワックス161P」）70部をニーダーにて120℃で熔融混練し、この熔融混練したものを三本ロールミルでさらに混練後、冷却、粉碎してカーボンブラックカラーベースを作製した。作製したカーボンブラックカラーベース67部、低密度ポリエチレン（日本ユニカー社製の「NUC-8009」）33部及び酸化防止剤（チバスペシャルティーケミカル社製の「イルガノックス1076」）0.1部を単軸押出機（ダイス径3.0mm）にて160℃で熔融混練した。この熔融混練したものをダイス穴からストランド状に吐出し、このストランドを水槽で冷却した後、ペレタイザーで切断、賦型し、円柱状のマスターバッチペレット（黒1）を得た。得られたマスターバッチペレット（黒1）のペレットのサイズ及び比重は、表1及び2に示す。

—＜調製例5：酸化チタン含有マスターバッチペレットの調製＞

酸化チタン（デュポン社製の「タイピュアR-104」）70部、直鎖状低密度ポリエチレンパウダー（日本ユニカー社製の「NUCG-4371」）30部、酸化防止剤（チバスペシャルティーケミカル社製の「イルガノックス1076」）0.1部、ステアリン酸カルシウム（大日本インキ化学工業社製の「ステアリン酸カルシウム」）0.05部及び帯電防止剤（花王社製の「エレクトロストリッパーTS-2」）0.1部をファーレル型コンティニアスミキサーにて200℃で熔融混練した。この熔融混練したものを単軸押出機（ダイス径3.0mm）にて200℃で、ダイス穴からストランド状に吐出し、このストランドを水槽で冷却した後、ペレタイザーで切断、賦型し、円柱状のマスターバッチペレット（白16～18）を得た。得られたマスターバッチペレット（白16～18）は、それぞれペレタイザーの速度を調整することにより、ペレットのサイズを変えた。それぞれのペレットのサイズ及び比重は、表3に示す。

＜調製例6：フタロシアニン系有機顔料含有マスターバッチペレットの調製＞

フタロシアニン系有機顔料であるシアニングリーン（大日本インキ化学工業社製の「ファーストゲンスーパーGREEN S」）55部及び低分子量ポリエチレンワックス（三洋化成社製の「サンワックス161P」）45部をニーダーにて120℃で熔融混練し、この熔融混練したものを三本ロールミルでさらに混練後、冷却、粉碎してシアニンググリーンカラーベースを作製した。作製したシアニンググリーンカラーベース5.5部、低密度ポリエチレン（日本ユニカー社製の「NUC-8009」）94.5部及び酸化防止剤（チバスペシャルティークミカル社製の「イルガノックス1076」）0.1部を単軸押出機（ダイス径3.0mm）にて160℃で熔融混練した。この熔融混練したものをダイス穴からストランド状に吐出し、このストランドを水槽で冷却した後、ペレタイザーで切断、賦型し、円柱状のマスターバッチペレット（緑1）を得た。得られたマスターバッチペレット（緑1）のサイズ及び比重は、表3に示す。

＜調製例7：イソインドリン系顔料含有のマスターバッチペレットの調製＞

イソインドリン系顔料（クラリアント社製の「グラフトールイエローH2R」）50部及び低分子量ポリエチレンワックス（三洋化成社製の「サンワックス161P」）50部をニーダーにて120℃で熔融混練し、この熔融混練したものを三本ロールミルでさらに混練後、冷却、粉碎してインドリンカラーベースを作製した。作製したイソインドリンカラーベース6部、低密度ポリエチレン（日本ユニカー社製の「NUC-8009」）94部及び酸化防止剤（チバスペシャルティークミカル社製の「イルガノックス1076」）0.1部を単軸押出機（ダイス径3.0mm）にて160℃で熔融混練した。この熔融混練したものをダイス穴からストランド状に吐出し、このストランドを水槽で冷却した後、ペレタイザーで切断、賦型し、円柱状のマスターバッチペレット（黄1）を得た。得られたマスターバッチペレット（黄1）のサイズ及び比重は、表3に示す。

＜調製例8：酸化チタン含有マスターバッチペレットの調製＞

酸化チタン（デュポン社製の「タイピュア R-103」）70部、ポリプロピレン（日本ポリオレフィン社製の「PMA60Z」）30部及び酸化防止剤（チバスペシャルティークミカル社製の「イルガノックス1010」）0.1部を二軸押出機（ダイス径3.5mm）にて200℃で熔融混練した。この熔融混練したも

のをダイス穴からストランド状に吐出し、このストランドを水槽で冷却した後、ペレタイザーで切断、賦型し、円柱状のマスターバッチペレット（白 19 及び 20）を得た。得られたマスターバッチペレット（白 19 及び 20）は、それぞれペレタイザーの速度を調整することにより、ペレットのサイズを変えた。それぞれのペレットのサイズ及び比重は、表 4 に示す。

<調製例 9：チタンイエロー顔料含有マスターバッチペレットの調製>

複合酸化物顔料であるチタンイエロー顔料（日本フェロー社製の「42-118A」）50部、低分子量ポリエチレンワックス（三洋化成社製の「サンワックス 161P」）10部、パウダー状ポリプロピレン（三井住友ポリオレフィン社製の「J604P」）40部及び酸化防止剤（旭電化社製の「AO-80」）0.1部を二軸押出機（ダイス径 4.0 mm）にて 180℃で熔融混練した。この熔融混練したものをダイス穴からストランド状に吐出し、このストランドを水槽で冷却した後、ペレタイザーで切断、賦型し、円柱状のマスターバッチペレット（黄 2 及び 3）を得た。得られたマスターバッチペレット（黄 2 及び 3）は、それぞれペレタイザーの速度を調整することにより、ペレットのサイズを変えた。それぞれのペレットのサイズ及び比重は、表 4 に示す。

<調製例 10：カーボンブラック含有マスターバッチペレットの調製>

オイルファーネスカーボンブラック（三菱化学社製の「MA-100」）40部、低密度ポリエチレン（日本ポリオレフィン社製の「ジェイレックス JF424S」）60部及び酸化防止剤（チバススペシャルティケミカル社製の「イルガノックス 1076」）1部をバンバリーミキサータイプの混練機で熔融混練した。この熔融混練したものをフィーダールーダータイプ賦形機を用いて、直径 3 mm の球形のカーボンブラックカラーベースを作製した。作製したカーボンブラックカラーベース 50部及び低密度ポリエチレン（日本ポリオレフィン社製の「JF424S」）50部を単軸押出機（T型ダイス：幅 100 mm × 厚さ 2.5 mm）にて 160℃で熔融混練した。この熔融混練したものを T 型ダイスからシート状に吐出し、カーボンブラック含有した樹脂シートを得た。このシートをシートカット法により、カッターで裁断して、角柱状のマスターバッチ（黒 2 及び 3）を得た。得られたマスターバッチペレット（黒 2 及び 3）は、それぞれカッターを調整することに

より、ペレットのサイズを変えた。それぞれのペレットのサイズ及び比重は、表4に示す。

＜調製例11：弁柄含有マスターバッチペレットの調製＞

酸化鉄系顔料である弁柄（戸田弁柄社製の「120ED」）70部及び低分子量ポリエチレンワックス（三洋化成社製の「サンワックス161P」）30部をニーダーにて120℃で熔融混練し、この熔融混練したものを三本ロールミルでさらに混練後、冷却、粉碎して弁柄カラーベースを作製した。作製した弁柄カラーベース5.7部、ポリプロピレン（日本ポリオレフィン社製の「PMA60Z」）94.3部及び酸化防止剤（チバスペシャルティーケミカル社製の「イルガノックス1010」）0.1部を単軸押出機（ダイス径3.0mm）にて200℃で熔融混練した。この熔融混練したものをダイス穴からストランド状に吐出し、このストランドを水槽で冷却した後、ペレタイザーで切断、賦型し、円柱状のマスターバッチペレット（茶3及び4）を得た。得られたマスターバッチペレット（茶3及び4）は、それぞれペレタイザーの速度を調整することにより、ペレットのサイズを変えた。それぞれのペレットのサイズ及び比重は、表4に示す。

――＜調製例12：酸化防止剤含有マスターバッチペレットの調製＞――

酸化防止剤（旭電化社製の「PEP-36」）10部、低密度ポリエチレン（日本ユニカー社製の「PES-20」）90部及び酸化防止剤（チバスペシャルティーケミカル社製の「イルガノックス1010」）0.1部を二軸押出機（ダイス径3.5mm）にて150℃で熔融混練した。この熔融混練したものをダイス穴からストランド状に吐出し、このストランドを水槽で冷却した後、ペレタイザーで切断、賦型し、円柱状のマスターバッチペレット（酸化防止剤1及び2）を得た。得られたマスターバッチペレット（酸化防止剤1及び2）は、それぞれペレタイザーの速度を調整することにより、ペレットのサイズを変えた。それぞれのペレットのサイズ及び比重は、表4に示す。

＜調製例13：光安定剤含有マスターバッチペレットの調製＞

光安定剤（三共化成社製の「サノールLS-770」）10部、低密度ポリエチレン（日本ユニカー社製の「PES-20」）90部及び酸化防止剤（チバスペシャルティーケミカル社製の「イルガノックス1010」）0.1部を二軸押出機（ダ

イス径3.5mm)にて150℃で熔融混練した。この熔融混練したものをダイス穴からストランド状に吐出し、このストランドを水槽で冷却した後、ペレタイザーで切断、賦型し、円柱状のマスターバッチペレット(光安定剤1及び2)を得た。得られたマスターバッチペレット(光安定剤1及び2)は、それぞれペレタイザーの速度を調整することにより、ペレットのサイズを変えた。それぞれのペレットのサイズ及び比重は、表4に示す。

<実施例1～9及び比較例1～7>

上記の各調製例で得られたマスターバッチペレットを表1及び2に示した配合量で配合したものをタンブラー型ミキサーで混合し、各マスターバッチペレット混合物を得た。

<実施例10、11及び比較例8>

上記の各調製例で得られたマスターバッチペレットを表3に示した配合量で配合したものをタンブラー型ミキサーで混合し、各マスターバッチペレット混合物を得た。

<実施例12及び比較例9、10>

上記の各調製例で得られたマスターバッチペレットを表4に示した配合量で配合したものをタンブラー型ミキサーで混合し、各マスターバッチペレット混合物を得た。

(1) 実施例1～9及び比較例1～7の評価方法

(1-1) ペレット分離の評価用シートの作製

上記の実施例1～9及び比較例1～7で得られたマスターバッチペレット混合物を、容量式自動供給機(産業機電社製の「MBミニE型」)のホッパーに投入し、約1.5kg/時間の供給速度で運転した。次に、供給機より排出されたマスターバッチペレット混合物を供給開始10分後及び50分後に5分間それぞれ採取した。採取したマスターバッチペレット混合物を160℃に加熱した二本ロールミルで3分間混練し、180℃に加熱した圧縮成形機で厚さ1mmのシートで作製した。

(1-2) ペレット分離の評価

上記の供給10分後の試料で作製したシート及び供給50分後の試料で作製し



たシートの色度を、それぞれ分光色度計（ミノルタ社製の「CM-2002型」）で測定した。次に、供給10分後の試料で作製したシートの色度を標準として、供給50分後の試料で作製したシートの色度との色差 $\Delta E^*$ を求めた。得られた色差 $\Delta E^*$ の値から、以下の基準で評価し、ペレット分離の代用評価とした。

なお、色差 $\Delta E^*$ は小さいほど良いものとする。

○：色差 $\Delta E^*$ が2未満、×：色差 $\Delta E^*$ が2以上

（○は良い結果であることを表し、×は良くない結果であることを表す。）

## （2）実施例10、11及び比較例8の評価方法

### （2-1）ペレット分離の評価用フィルムの作製

ロスインウェート式重量式自動供給機（産業機電社製の「F-250型」）を用いて、実施例10、11及び比較例8で得られたマスターバッチペレット混合物を0.5kg/時間の供給速度で、被添加樹脂である高密度ポリエチレン（日本ポリオレフィン社製の「KFY51A」）を10kg/時間の供給速度で、インフレーション成形機（モダン社製、スクリー径40mm）にそれぞれ供給した。インフレーションフィルム巻き取り機を調整して、厚み30 $\mu$ m、幅30cmのフィルムを得た。また、評価用として、成形開始5分後、30分後、50分後のフィルムを採取した。

### （2-2）ペレット分離の評価用

上記で得られた各フィルムの色度を分光色度計（ミノルタ社製の「CM-2002型」）で測定した。次に、成形開始5分後、30分後、50分後の各フィルムの色度の平均値と成形開始50分後のフィルムの色度との色差 $\Delta E^*$ を求めた。得られた色差 $\Delta E^*$ の値から、以下の基準で評価し、ペレット分離の代用評価とした。

○：色差 $\Delta E^*$ が2未満、×：色差 $\Delta E^*$ が2以上

## （3）実施例12及び比較例9、10の評価方法

### （3-1）ペレット分離の評価用成形物の作製

実施例12及び比較例9、10で得られたマスターバッチペレット混合物を、フルフライトスクリーを装着した単軸押出機（ダイス径3.0mm）にて200℃で熔融混練した。この熔融混練したものをダイス穴から約10kg/時間の

吐出量でストランド状に吐出し、このストランドを水槽で冷却した後、ペレタイザーで切断、賦型し、高さ 3.2 mm、直径 3.2 mm の円柱状の調色マスターバッチペレットを得た。この際、調色マスターバッチペレットの作製開始後、10 分、20 分、30 分、40 分、50 分の時点で、調色マスターバッチペレットを各 100 g ずつ採取した。また、前記 5 点の各調色マスターバッチペレットから 20 g ずつ取り出して、混合した物を標準調色マスターバッチペレットとした。

次に、上記で得られた調色マスターバッチペレットの作製開始 50 分後の調色マスターバッチペレット 3 部及びポリプロピレン（三井住友ポリオレフィン社製の「J604」）100 部の混合物を用いて、射出成形機（三菱重工社製の「MS S50」）で、大きさが 55×90×2 mm の成形物を作製した。また、同様の操作で、上記で得られた標準調色マスターバッチペレット 3 部及びポリプロピレン（三井住友ポリオレフィン社製の「J604」）100 部の混合物を用いた成形物も作製した。

### （3-2）ペレット分離の評価

上記の調色マスターバッチペレットの作製開始 50 分後の調色マスターバッチペレットで作製した成形物及び標準調色マスターバッチペレットで作製した成形物の色度を、それぞれ分光色度計（ミノルタ社製の「CM-2002 型」）で測定した。次に、標準調色マスターバッチペレットで作製した成形物の色度と調色マスターバッチペレットの作製開始 50 分後の調色マスターバッチペレットで作製した成形物の色度との色差  $\Delta E^*$  を求めた。得られた色差  $\Delta E^*$  の値から、以下の基準で評価し、ペレット分離の代用評価とした。

○：色差  $\Delta E^*$  が 2 未満、×：色差  $\Delta E^*$  が 2 以上

実施例 1～9 の評価結果を表 1 に、比較例 1～7 の評価結果を表 2 に示し、実施例 10、11 及び比較例 8 の評価結果を表 3 に示し、実施例 12 及び比較例 9、10 の評価結果を表 4 に示す。



表 2

マスターバッチ ペレットの種類		マスターバッチペレットのサイズ及び比重					比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7
		高さ(H) (mm)	直径 (mm)	底面積(S) (mm <sup>2</sup> )	H/S (mm <sup>-1</sup> )	比 重							
高比重マスターバッチペレット群(A)	白10	3.0	0.5	0.20	15.28	1.96	50部 (15.28)						
	白11	1.0	1.0	0.79	1.27	1.96		50部 (1.27)					50部 (1.27)
	白12	2.0	1.5	1.77	1.13	1.96			50部 (1.13)				
	白13	2.0	2.0	3.14	0.64	1.96				50部 (0.64)			
	白14	4.0	2.0	3.14	1.27	1.96					50部 (1.27)		
	白15	3.0	3.0	7.07	0.42	1.96						50部 (0.42)	
	高比重マスターバッチペレット群(A)の全質量						50部	50部	50部	50部	50部	50部	50部
	高比重マスターバッチペレット群(A)の $\Sigma(Hp/Sp) \times Rp$						15.28	1.27	1.13	0.64	1.27	0.42	1.27
低比重マスターバッチ ペレット群(B)	茶1	1.2	1.2	1.13	1.06	1.37	40部 (0.85)	40部 (0.85)	40部 (0.85)	40部 (0.85)	40部 (0.85)		
	茶2	3.0	1.2	1.13	2.65	1.37						40部 (2.12)	40部 (2.12)
	赤1	1.0	1.0	0.79	1.27	1.03	5部 (0.13)	5部 (0.13)	5部 (0.13)	5部 (0.13)	5部 (0.13)	5部 (0.13)	5部 (0.13)
	黒1	1.2	1.2	1.13	1.06	1.02	5部 (0.11)	5部 (0.11)	5部 (0.11)	5部 (0.11)	5部 (0.11)	5部 (0.11)	5部 (0.11)
	低比重マスターバッチペレット群(B)の全質量						50部	50部	50部	50部	50部	50部	50部
	低比重マスターバッチペレット群(B)の $\Sigma(Hq/Sq) \times Rq$						1.09	1.09	1.09	1.09	1.09	2.36	2.36
	式(1)での値 (mm <sup>-1</sup> )						14.19	0.18	0.04	-0.45	0.18	-1.94	-1.09
評価結果		色差 $\Delta E^*$					3.4	5.5	4.8	2.8	3.8	5.4	5.4
		ペレット分離					×	×	×	×	×	×	×

表 3

マスターバッチ ペレットの種類		マスターバッチペレットのサイズ及び比重					実施例10	実施例11	比較例8
		高さ(H) (mm)	直径 (mm)	底面積(S) (mm <sup>2</sup> )	H/S (mm <sup>-1</sup> )	比 重			
高 比 重 マ ス タ ー バ ッ チ 群 (A)	白16	3.0	1.2	1.13	2.65	1.98	80部 (2.65)		
	白17	4.5	1.2	1.13	3.98	1.98		80部 (3.98)	
	白18	1.2	1.2	1.13	1.06	1.98			80部 (1.06)
	高比重マスターバッチペレット群(A)の全質量						80部	80部	80部
	高比重マスターバッチペレット群(A)の $\Sigma(H_p/S_p) \times R_p$						2.65	3.98	1.06
低 比 重 マ ス タ ー バ ッ チ 群 (B)	緑1	1.0	1.0	0.79	1.27	0.93	10部 (0.64)	10部 (0.64)	10部 (0.64)
	黄1	1.2	1.2	1.13	1.06	0.93	10部 (0.53)	10部 (0.53)	10部 (0.53)
	低比重マスターバッチペレット群(B)の全質量						20部	20部	20部
	低比重マスターバッチペレット群(B)の $\Sigma(H_q/S_q) \times R_q$						1.17	1.17	1.17
式(1)での値 (mm <sup>-1</sup> )							1.48	2.81	-0.11
評価結果					色 差 $\Delta E^*$		1.7	0.8	2.9
					ペレット分離		○	○	×

表 4

マスターバッチペレットの種類		マスターバッチペレットのサイズ及び比重							実施例12	比較例9	比較例10
		高さ(H) (mm)	直径 (mm)	縦 (mm)	横 (mm)	底面積(S) (mm <sup>2</sup> )	H/S (mm <sup>-1</sup> )	比 重			
(A) 高比重マスターバッチペレット群	白19	1.0	1.0	—	—	0.79	1.27	2.00		20部 (1.27)	20部 (1.27)
	白20	3.0	1.0	—	—	0.79	3.82	2.00	20部 (3.82)		
	高比重マスターバッチペレット群(A)の全質量								20部	20部	20部
	高比重マスターバッチペレット群(A)の $\Sigma(Hp/Sp) \times Rp$								3.82	1.27	1.27
(B) 低比重マスターバッチペレット群	黄2	1.0	1.2	—	—	1.13	0.88	1.53	4部 (0.07)	4部 (0.07)	
	黄3	4.0	1.2	—	—	1.13	3.54	1.53			4部 (0.27)
	黒2	1.2	—	1.2	1.5	1.80	0.67	1.01	15部 (0.19)	15部 (0.19)	
	黒3	3.0	—	1.2	1.5	1.80	1.67	1.01			15部 (0.48)
	茶3	1.2	1.2	—	—	1.13	1.06	0.95	3部 (0.06)	3部 (0.06)	
	茶4	4.0	1.2	—	—	1.13	3.54	0.95			3部 (0.20)
	酸化防止剤 1	1.2	1.2	—	—	1.13	1.06	1.01	15部 (0.31)	15部 (0.31)	
	酸化防止剤 2	4.0	1.2	—	—	1.13	3.54	1.01			15部 (1.02)
	光安定剤1	1.2	1.2	—	—	1.13	1.06	1.01	15部 (0.31)	15部 (0.31)	
	光安定剤2	4.0	1.2	—	—	1.13	3.54	1.01			15部 (1.02)
	低比重マスターバッチペレット群(B)の全質量								52部	52部	52部
	低比重マスターバッチペレット群(B)の $\Sigma(Hq/Sq) \times Rq$								0.94	0.94	2.99
式(1)での値 (mm <sup>-1</sup> )								2.88	0.33	-1.72	
評価結果							色差 $\Delta E^*$	0.1	9.5	12.5	
							ペレット分離	○	×	×	

表1～4に記載した各マスターバッチペレットの配合量の下段のカッコ内の値は、各マスターバッチペレットの  $(Hp/Sp) \times Rp$  又は  $(Hq/Sq) \times Rq$  の値である。

表1の評価結果から、前記式(1)を満たす実施例1～9のマスターバッチペレット混合物は、自動供給機により供給された際、色度の時間的変動が小さい。このことから、式(1)を満たすマスターバッチペレット混合物は、ペレットの分離がなく安定して成形機に供給でき、均一の組成を有する成形物が得られることが分かった。

表2の評価結果から、式(1)を満たさない比較例1～7のマスターバッチペレット混合物は、自動供給機により供給された際、色度の時間的変動が大きい。このことから、式(1)を満たさないマスターバッチペレット混合物は、ペレットの分離を生じ、安定して成形機に供給できず、均一の組成を有する成形物が得られないことが分かった。

表3の評価結果から、式(1)を満たす実施例10及び11のマスターバッチペレット混合物を用いたフィルムは、成形時間による色度の変動が小さい。このことから、式(1)を満たすマスターバッチペレット混合物は、ペレットの分離がなく安定して成形機に供給でき、均一の組成を有するフィルムが得られることが分かった。

一方、前記式(1)を満たさない比較例8のマスターバッチペレット混合物を用いたフィルムは、成形時間による色度の変動が大きい。このことから、式(1)を満たさないマスターバッチペレット混合物は、ペレットの分離を生じ、安定して成形機に供給できず、均一の組成を有するフィルムが得られないことが分かった。

表4の評価結果から、前記式(1)を満たす実施例12のマスターバッチペレット混合物を用いて、混練力の弱いフルフライトスクリュウを装着した単軸押出機で作製した調色マスターバッチペレットであっても、成形時間による色度の変動が小さい。このことから、式(1)を満たすマスターバッチペレット混合物は、ペレットの分離がなく安定して押出機に供給でき、均一の組成を有する調色マスターバッチペレットならびに成形物が得られることが分かった。

一方、式(1)を満たさない比較例9及び10のマスターバッチペレット混合物を用いて作製した調色マスターバッチペレットは、成形時間による色度の変動が大きい。このことから、式(1)を満たさないマスターバッチペレット混合物は、ペレットの分離を生じ、安定して押出機に供給できず、均一の組成を有する調色マスターバッチペレットならびに成形物が得られないことが分かった。

#### 産業上の利用の可能性

本発明のマスターバッチペレット混合物は、組成むらのない均一な成形物を

得ることができる高比重マスターバッチペレットと低比重マスターバッチペレットとの混合物を提供できる。

すなわち、本発明のマスターバッチペレット混合物は、高比重のマスターバッチペレットと低比重のマスターバッチペレットとの混合物であっても、当該マスターバッチペレット混合物を成形機に供給する際に、ペレットが分離することなく均一な混合状態を維持して、安定に供給することができ、よって組成むらのない均一な成形物を得ることができる。また上記の理由から、表面外観に優れたプラスチック成形物や成形物に組成むらを生じさせない調色マスターバッチペレットの製造原料として有用である。

さらに、本発明のマスターバッチペレット混合物は、マスターバッチに高比重の配合物を添加する場合においても、ペレットの比重を低減するため、高比重の配合物の添加量を低く抑える必要がない。このことから、配合の自由度を損なわれない利点を有する。また、高濃度のマスターバッチを用いることができるため、被添加樹脂へのマスターバッチの添加量を低減できる利点も有する。



## 請求の範囲

1. 比重 1.8～3.5 を有する高比重マスターバッチペレット群 (A) と、比重 0.5～1.6 を有する低比重マスターバッチペレット群 (B) との混合物であつて、前記高比重マスターバッチペレット群 (A) は、第 1 種から第 m 種までの m 種の比重の異なる柱状マスターバッチペレットで構成され、前記低比重マスターバッチペレット群 (B) は、第 1 種から第 n 種までの n 種の比重の異なる柱状マスターバッチペレットで構成され、前記高比重マスターバッチペレット群 (A) と前記低比重マスターバッチペレット群 (B) とが、下式 (1) を満足する、マスターバッチペレット混合物。

$$0.5 \text{ (mm}^{-1}\text{)} \leq \sum_{p=1}^m \left[ \frac{H_p}{S_p} \times R_p \right] - \sum_{q=1}^n \left[ \frac{H_q}{S_q} \times R_q \right] \leq 1.2 \text{ (mm}^{-1}\text{)} \quad (1)$$

式中の各記号は下記を意味する。

m : 1～10 の整数

n : 1～10 の整数

p : 高比重マスターバッチペレット群 (A) を構成する柱状マスターバッチペレットの種番号

q : 低比重マスターバッチペレット群 (B) を構成する柱状マスターバッチペレットの種番号

H<sub>p</sub> : 高比重マスターバッチペレット群 (A) を構成する第 p 種の柱状マスターバッチペレットの高さ (mm)

S<sub>p</sub> : 高比重マスターバッチペレット群 (A) を構成する第 p 種の柱状マスターバッチペレットの底面積 (mm<sup>2</sup>)

R<sub>p</sub> : 高比重マスターバッチペレット群 (A) の全質量に対する第 p 種の柱状マスターバッチペレットの質量の割合

H<sub>q</sub> : 低比重マスターバッチペレット群 (B) を構成する第 q 種の柱状マスターバッチペレットの高さ (mm)

$S_q$  : 低比重マスターバッチペレット群 (B) を構成する第  $q$  種の柱状マスターバッチペレットの底面積 ( $\text{mm}^2$ )

$R_q$  : 低比重マスターバッチペレット群 (B) の全質量に対する第  $q$  種の柱状マスターバッチペレットの質量の割合

2. 下式 (2) の値が  $1.5 \sim 13 (\text{mm}^{-1})$  の範囲にあり、かつ、下式 (3) の値が  $0.5 \sim 1.5 (\text{mm}^{-1})$  の範囲にある、請求項 1 記載のマスターバッチペレット混合物。

$$\sum_{p=1}^m \left( \frac{H_p}{S_p} \times R_p \right) \quad (2)$$

$$\sum_{q=1}^n \left( \frac{H_q}{S_q} \times R_q \right) \quad (3)$$

3. 前記  $H_p$  が  $2.0 \sim 6.0 \text{ mm}$  の範囲にあり、前記  $H_q$  が  $1.0 \sim 3.0 \text{ mm}$  の範囲にあり、かつ、前記  $S_p$  及び  $S_q$  がそれぞれ  $0.1 \sim 2.3 \text{ mm}^2$  の範囲にある、請求項 1 記載のマスターバッチペレット混合物。

## 要 約 書

比重 1.8 ～ 3.5 を有する高比重マスターバッチペレット群 (A) と、比重 0.5 ～ 1.6 を有する低比重マスターバッチペレット群 (B) との混合物である。前記マスターバッチペレット群 (A) は、 $m$  種類の比重の異なる柱状マスターバッチペレットで構成され、前記マスターバッチペレット群 (B) は、 $n$  種類の比重の異なる柱状マスターバッチペレットで構成される。前記高比重マスターバッチペレット群 (A) と前記低比重マスターバッチペレット群 (B) とが、下式 (1) を満足する。

$$0.5 \text{ (mm}^{-1}\text{)} \leq \sum_{p=1}^m \left( \frac{H_p}{S_p} \times R_p \right) - \sum_{q=1}^n \left( \frac{H_q}{S_q} \times R_q \right) \leq 1.2 \text{ (mm}^{-1}\text{)} \quad (1)$$

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☐ BLACK BORDERS

☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

☐ FADED TEXT OR DRAWING

☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING

☐ SKEWED/SLANTED IMAGES

☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

☐ GRAY SCALE DOCUMENTS

☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**